

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-248964

(43)Date of publication of application : 14.09.2001

(51)Int.Cl.

F25J 3/08

(21)Application number : 2000-062999

(71)Applicant : SUMISHO FINE GAS KK
SUMITOMO HEAVY IND LTD

(22)Date of filing : 08.03.2000

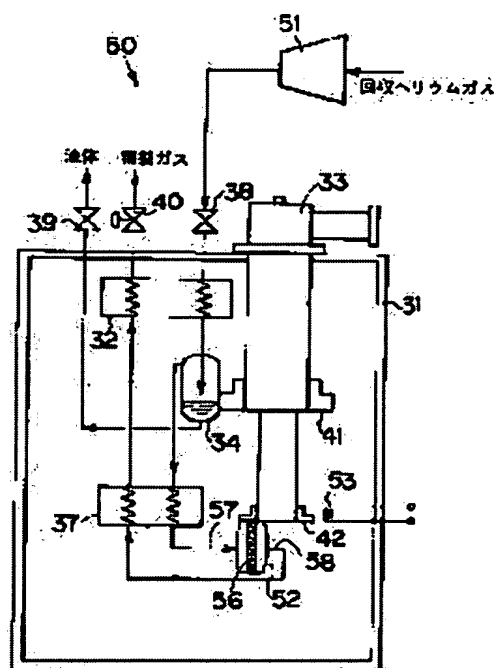
(72)Inventor : AOKI KAORU
YAMADA TOSHIHARU
SASAKI SHUNZO

(54) APPARATUS AND METHOD FOR GAS REFINING

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an apparatus and a method for gas refining in a greater amount wherein upon any impurity of helium gas, hydrogen gas, and other gases being removed, a low temperature impurity removal filter 52 is used but without the use of an adsorbent to remove any impurity for easy gas refining.

SOLUTION: Noticing that any impurity is solidified and separated in low temperature gas, and is removed with a removal filter 52 with the construction of a freezing machine 33 and the removal filter 52, a gas refining apparatus removes and refines any impurity from gas by cooling gas involving the impurity. It includes a freezing machine 33 capable of cooling gas to very low temperature, and an impurity removal filter 52 for filtrating the impurity cooled and solidified to the very low temperature.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2001-248964
(P2001-248964A)

(43)公開日 平成13年9月14日(2001.9.14)

(51) Int.Cl.⁷
F 2 5 J 3/08

識別記号

F I
F 2 5 J 3/08

テマート* (参考)
4D047

審査請求 未請求 請求項の数 8 OL (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2000-62999(P2000-62999)

(22) 出願日 平成12年3月8日(2000.3.8)

(71)出願人 597105809
住商ファインガス株式会社
東京都港区新橋2丁目13番8号

(71)出願人 000002107
住友重機械工業株式会社
東京都品川区北品川五丁目9番11号

(72)発明者 青木 薫
神奈川県平塚市夕陽ヶ丘63番30号 住友重
機械工業株式会社平塚事業所内

(74)代理人 100079360
弁理士 池澤 寛

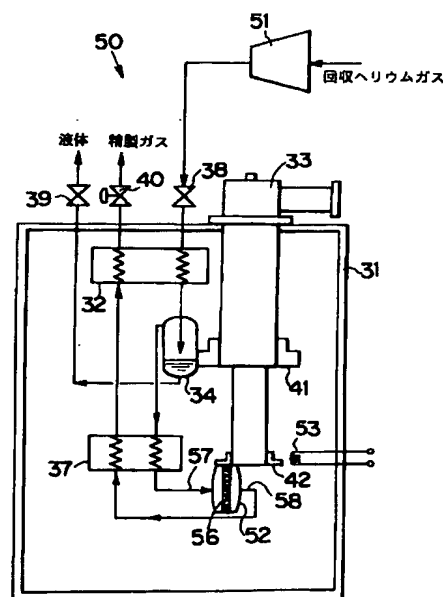
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガス精製装置およびガス精製方法

(57) 【要約】

【課題】 ヘリウムガス、水素ガスその他のガスの不純物を冷凍機 33 を用いて除去するにあたり、吸着材を用いず、低温の不純物除去フィルター 52 を用いて不純物を除去し、大量かつ容易にガスの精製が可能なガス精製装置およびガス精製方法を提供すること。

【解決手段】 冷凍機３３および除去フィルター５２を備えた構成で、低温ガス中に不純物を固化、析出させ、これを除去フィルター５２で除去することに着目したもので、不純物を含むガスを冷却することによりガスから不純物を除去して精製するガス精製装置であって、ガスを極低温に冷却可能な冷凍機３３と、極低温に冷却されて固化した不純物をろ過する不純物除去フィルター５２と、を有することを特徴とする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 不純物を含むガスを冷却することにより当該ガスからこの不純物を除去して精製するガス精製装置であって、

前記ガスを極低温に冷却可能な冷凍機と、
この極低温に冷却されて固化した前記不純物をろ過する不純物除去フィルターと、
を有することを特徴とするガス精製装置。

【請求項2】 前記不純物除去フィルターは、これを前記冷凍機により冷却することを特徴とする請求項1記載のガス精製装置。

【請求項3】 前記ガスを昇圧して供給可能な圧縮機を設けたことを特徴とする請求項1記載のガス精製装置。

【請求項4】 前記不純物除去フィルターの上流側に、
前記ガスの冷熱回収を行う熱交換器と、
前記冷凍機により冷却する気液分離器と、を設けたことを特徴とする請求項1記載のガス精製装置。

【請求項5】 前記不純物除去フィルターは、これを前記冷凍機の冷却ステージに熱接触させたことを特徴とする請求項1記載のガス精製装置。

【請求項6】 前記不純物除去フィルターは、前記冷凍機の冷却ステージに熱接触させたガス配管内の前記固化した不純物を除去可能としたことを特徴とする請求項1記載のガス精製装置。

【請求項7】 不純物を含むガスを冷却することにより当該ガスからこの不純物を除去して精製するガス精製装置であって、
冷凍機により前記ガスを極低温に冷却する冷却工程と、
この極低温に冷却されて固化した前記不純物を不純物除去フィルターによりろ過するろ過工程と、
を有することを特徴とするガス精製方法。

【請求項8】 前記ガスの冷熱回収を行う熱交換工程と、
前記冷凍機による冷却により前記ガス内の気液を分離する気液分離工程と、を有することを特徴とする請求項7記載のガス精製方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明はガス精製装置およびガス精製方法にかかるもので、とくに半導体露光装置などで使用されたヘリウムガス、水素ガスその他のガスを回収・精製するガス精製装置およびガス精製方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来における、たとえばヘリウムガスの精製方法としては、「ゲッター」と呼ばれる吸収材にヘリウムガス中の不純物を吸収させる方法がある。図7は、従来のヘリウムガス精製装置1の概略説明図であつ

て、ヘリウムガス精製装置1は、原料ガス供給部2と、フィルター3と、流量計4と、精製筒5と、再生用キャリアーガス供給部6と、再生排ガス排出部7と、精製ガス排出部8と、を有する。

【0003】 精製筒5は、吸着筒9および吸着筒用ヒーター10と、吸収筒11および吸収筒用ヒーター12と、を有する。吸着筒用ヒーター10は、シリカゲルやモレキュラーシーブなどを充填してあるもので、原料ガス中から水などを除去する。吸収筒用ヒーター12は、窒素などと反応する触媒（ゲッター）を充填してあるもので、原料ガス中から窒素などを除去する。

【0004】 こうした構成のヘリウムガス精製装置1は、吸収筒11に充填する吸収材の量の面から大量処理には向かず、ごく少量のヘリウムガスの精製に用いられている。

【0005】 図8は、大量のヘリウムガスを精製することを目的としている、従来の他のヘリウムガス精製装置20の概略説明図であって、ヘリウムガス精製装置20は、断熱容器21と、冷熱を回収するための熱交換器22と、気液分離筒23と、活性炭などの吸着材を充填した吸着筒24と、を有する。断熱容器21には、液体窒素25を收容してあるとともに、原料ガス用バルブ26と、液体排出口用バルブ27と、精製ガス排出口用圧力調整バルブ28と、を設けてある。

【0006】 こうした構成のヘリウムガス精製装置20において、原料ガスは、熱交換器22で予冷されたのち、気液分離筒23で水など沸点の高い不純物が液化除去される。除去された不純物は、必要に応じて液体排出口用バルブ27を開いて噴出・廃棄される。気液分離筒23から出た原料ガスは吸着筒24に入り、窒素成分などが吸着除去される。精製されたガスは、熱交換器22を通して冷熱回収され、常温のヘリウムガスとなって精製ガス排出口用圧力調整バルブ28から出る。

【0007】 この精製方法は、「深冷吸着法」として一般に使用され、ガス精製方法としては有効であるが、液体窒素25を使用するために取扱いが面倒なこと、および吸着筒24内の活性炭の再生時には液体窒素25を排出する必要があること、などの欠点を有している。

【0008】 図9は、従来のさらに他のヘリウムガス精製装置30（特許第1946248号）の概略説明図であって、ヘリウムガス精製装置30は、真空断熱容器31と、第1の熱交換器32と、GM（ギフォード・マクマホン）冷凍機33（冷凍機）と、気液分離器34と、第1の吸着筒35と、第2の吸着筒36と、第2の熱交換器37と、を有する。

【0009】 真空断熱容器31は、真空断熱層を有し、その内部を真空としてあるとともに、原料ガス用バルブ38と、液体排出口用バルブ39と、精製ガス排出口用圧力調整バルブ40と、を設けてある。

【0010】 GM冷凍機33は、温度約60Kレベルに

まで冷却可能な第1段冷却ステージ41、および温度約20Kレベルの極低温レベルにまで冷却可能な第2段冷却ステージ42を有し、第1段冷却ステージ41に気液分離器34および第1の吸着筒35を、第2段冷却ステージ42に第2の吸着筒36をそれぞれ熱接触させてある。

【0011】こうした構成のヘリウムガス精製装置30において、原料ガスは、第1の熱交換器32で予冷されたのち、気液分離器34で水など沸点の高い不純物が液化除去される。除去された不純物は、必要に応じて液体排出用バルブ39を開いて噴出・廃棄される。気液分離器34から出た原料ガスは第1の吸着筒35に入り、中間温度の沸点物質を除去され、原料ガスは、第2の熱交換器37を通ったのち、第2の吸着筒36で窒素成分などの低沸点物質が吸着除去される。精製されたガスは、第1の熱交換器32を通して冷熱回収され、常温のヘリウムガスとなって精製ガス排出口用圧力調整バルブ40から出る。

【0012】このヘリウムガス精製装置30およびそのガス精製方法は、ヘリウムガス精製装置20(図8)における液体窒素25の代わりにGM冷凍機33を用いることによりその作業性を改良しているが、基本的にはヘリウムガス精製装置20と同様の「深冷吸着法」に属し、不純物を低温の吸着材で吸着除去する方法を採用している。しかして、このヘリウムガス精製装置30もヘリウムガス精製装置20と同様に、いずれも活性炭などの吸着材を用いるため、この吸着材の再生時には常温あるいはそれぞれ以上の温度まで昇温する必要があるという問題がある。さらに、原料ガスはある程度の圧力を有していることを前提としているため、圧力の低い、たとえば大気圧のヘリウムガスを精製の対象とすることが難しいという問題がある。

【0013】とくに、次世代の半導体露光装置や光ファイバー製造装置などでは大量のヘリウムガスを消費する工程が必要となる可能性があり、こうしたヘリウムガスを回収し、精製して再使用することを可能とするガス精製装置およびガス精製方法が要請されている。

【0014】

【発明が解決しようとする課題】本発明は以上のような諸問題にかんがみなされたもので、ヘリウムガス、水素ガスその他のガスを大量かつ容易に精製可能なガス精製装置およびガス精製方法を提供することを課題とする。

【0015】また本発明は、冷凍機を用いて不純物を除去するにあたり、吸着材を用いず、その再生処理を不要としたガス精製装置およびガス精製方法を提供することを課題とする。

【0016】また本発明は、ガスを低温に冷却することにより不純物を固化、析出させ、さらに低温の不純物除去フィルターを用いて不純物を除去するガス精製装置およびガス精製方法を提供することを課題とする。

【0017】また本発明は、低温の不純物除去フィルターを用いて不純物を除去するとともに、この不純物除去フィルターの再生処理も容易なガス精製装置およびガス精製方法を提供することを課題とする。

【0018】

【課題を解決するための手段】すなわち本発明は、冷凍機および除去フィルターを備えた構成で、低温ガス中に不純物を固化、析出させ、これを除去フィルターで除去することに着目したもので、第一の発明は、不純物を含むガスを冷却することにより当該ガスからこの不純物を除去して精製するガス精製装置であって、上記ガスを極低温に冷却可能な冷凍機と、この極低温に冷却されて固化した上記不純物をろ過する不純物除去フィルターと、を有することを特徴とするガス精製装置である。

【0019】上記不純物除去フィルターは、これを上記冷凍機により冷却することができる。

【0020】上記ガスを昇圧して供給可能な圧縮機を設けることができる。

【0021】上記不純物除去フィルターの上流側に、上記ガスの冷熱回収を行う熱交換器と、上記冷凍機により冷却する気液分離器と、を設けることができる。

【0022】上記不純物除去フィルターは、これを上記冷凍機の冷却ステージに熱接触させることができる。

【0023】上記不純物除去フィルターは、上記冷凍機の冷却ステージに熱接触させたガス配管内の上記固化した不純物を除去可能とすることができる。

【0024】第二の発明は、不純物を含むガスを冷却することにより当該ガスからこの不純物を除去して精製するガス精製装置であって、冷凍機により上記ガスを極低温に冷却する冷却工程と、この極低温に冷却されて固化した上記不純物を不純物除去フィルターによりろ過するろ過工程と、を有することを特徴とするガス精製方法である。

【0025】上記ガスの冷熱回収を行う熱交換工程と、上記冷凍機による冷却により上記ガス内の気液を分離する気液分離工程と、を有することができる。

【0026】本発明によるガス精製装置およびガス精製方法においては、ヘリウムガスその他の原料ガスないし回収ガスをGM冷凍機などの冷凍機により冷却し、ガス中の不純物を固化、析出させて、低温の不純物除去フィルターによりろ過(トラップ)して除去するようにした。したがって、冷凍機によるトラップ温度を制御することにより原料ガス中の不純物の固化温度を調節し、これを簡単に固化させ、除去することができる。さらに、不純物の除去のために活性炭その他の吸着材を用いないため、温度制御を行うのみで、トラップしていた不純物を気化、排出することができ、不純物除去フィルターを簡単に再生することができる。

【0027】

【発明の実施の形態】つぎに本発明の第1の実施の形態

によるガス精製装置 50 をその精製方法とともに図 1 ないし図 5 にもとづき説明する。ただし、図 7 ないし図 9 と同様の部分には同一符号を付し、その詳述はこれを省略する。図 1 は、ガス精製装置 50 の概略説明図であって、ガス精製装置 50 は、圧縮機 51 と、前述した真空断熱容器 31、第 1 の熱交換器 32、GM 冷凍機 33、気液分離器 34、第 2 の熱交換器 37、原料ガス用バルブ 38、液体排出口用バルブ 39 および精製ガス排出口用圧力調整バルブ 40 と、不純物除去フィルター 52 と、電気ヒーター 53 と、を有する。

【0028】圧縮機 51 は、回収した大気圧のヘリウムガスなどの原料ガスをたとえば圧力 $2 \sim 7 \text{ Kg f/cm}^2$ まで昇圧して原料ガス用バルブ 38 から供給する。すなわち、この圧縮機 51 を装備することにより、大気圧になった使用済みのヘリウムガスその他のガスを効率的に回収し、精製することができる。

【0029】不純物除去フィルター 52 は、GM 冷凍機 33 の第 2 段冷却ステージ 42 にこれを熱接触してある。図 2 は、不純物除去フィルター 52 の断面図、図 3 は、図 2 の III-III 線断面図であって、不純物除去フィルター 52 は、SUS あるいは銅材によるフィルターハウジング 54 と、フィルターハウジング 54 により形成した除去空間 55 に張り渡した多数枚のフィルター材 56 と、を有する。なお、フィルターハウジング 54 の周囲を溶接してフィルター材 56 を固定している。

【0030】フィルター材 56 は、ナイロン繊維あるいはステンレス線などの微細フィルター（ろ過精度がたとえば $1 \mu\text{m}$ 以下）となっており、固化した窒素などの不純物をトラップ（捕捉）し、除去して、ガスをろ過する機能を有する。フィルターハウジング 54 には、除去空間 55 に連通して、導入側ガス配管 57 および導出側ガス配管 58 を開口させてある。

【0031】なお、不純物除去フィルター 52 と第 2 段冷却ステージ 42 との熱接触をより有効とするために、図 2 に仮想線で示すように、熱伝導性が良好な銅ブロック 59 を第 2 段冷却ステージ 42 と不純物除去フィルター 52 との間に接触面積を広げるように介在させることができる。

【0032】電気ヒーター 53 は、GM 冷凍機 33 によるトラップ温度を制御することにより原料ガス中の不純物の固化温度を調節するとともに、不純物除去フィルター 52 の再生時にこれを加熱するもので、その加熱温度を制御可能としてある。

【0033】こうした構成のガス精製装置 50 において、圧縮機 51 で昇圧されたヘリウムガスなどの回収ガス（原料ガス）は、第 1 の熱交換器 32 で冷熱を回収され（熱交換工程）、GM 冷凍機 33 の第 1 段冷却ステージ 41 により温度約 60 K レベルにまで冷却されている気液分離器 34 において水などの高沸点物質が液化除去される（気液分離工程）。

【0034】ついで冷熱回収の第 2 の熱交換器 37 で予冷され（熱交換工程）、導入側ガス配管 57 から不純物除去フィルター 52 に導入されるまでに、ヘリウムガス中に残っている不純物とその凝固点温度以下に冷却されて（冷却工程）、固化、析出し、不純物除去フィルター 52 においてそのフィルター材 56 に凝着ないし凝固してトラップされる（ろ過工程）。このときのヘリウムガスの温度は、第 2 段冷却ステージ 42 に設けた電気ヒーター 53 の制御により、不純物の濃度の関数として任意にこれを設定する。もちろん、第 2 段冷却ステージ 42 はその無負荷状態では、温度約 10 K まで冷却可能である。

【0035】不純物が除去された精製ガスは、第 2 の熱交換器 37 および第 1 の熱交換器 32 において冷熱を回収されたのち、常温のヘリウムガスとなって、ガス精製装置 50 からその使用する場所に送られる。

【0036】図 4 は、温度に対する不純物（窒素）の飽和蒸気圧の関係を示すグラフであって、温度 300 K においてヘリウムガスの圧力が 3 atm 、代表不純物が窒素で、その不純物濃度が 40 ppm である場合を考える。このときの状態は、図 4 の A 点に相当する。このガスが冷却されると、ガス温度が 42 K のときに窒素の飽和蒸気圧曲線にぶつかる（B 点）。すなわち、不純物濃度 40 ppm の窒素を含むヘリウムガスを温度 42 K まで冷却すると窒素が固化、析出することになる。したがって、ヘリウムガスを温度 42 K 以下、たとえば 20 K まで冷却すると、図示のような窒素の飽和蒸気圧曲線に沿って窒素の分圧が低下し、窒素分圧が $1 \times 10^{-11} \text{ Torr}$ （不純物として $4 \times 10^{-3} \text{ ppb}$ に相当）になる状態になるように固体窒素が析出することになる。すなわち、図 1 の第 2 の熱交換器 37 から導入側ガス配管 57 を通って不純物除去フィルター 52 に導入されるまでに、温度 20 K まで冷却すれば、ヘリウムガス中に残っている不純物たとえば窒素がその凝固点温度以下に冷却されて、固化、析出し、窒素分圧が $1 \times 10^{-11} \text{ Torr}$ となる。

【0037】図 5 は、経過時間に対する窒素濃度の関係を示すグラフであって、窒素濃度 40 ppm のヘリウムガスを毎分 25 リットル で流しながら GM 冷凍機 33 を起動したときのトラップ温度の変化、およびヘリウムガス中の窒素濃度を測定した実験結果を示している。なお、横軸は時間を示しているが、出発点は任意としてある。図示のように、トラップ温度が 49 K 以下になると、ガス精製装置 50 を出たヘリウムガス中の窒素濃度は急激に低下し始め、トラップ温度がその制御温度たとえば 28 K になると、窒素濃度検出器（ガスクロマトグラフィ）の検知限界以下の窒素濃度となる。すなわちこの状態で、微量の窒素は固化、析出し、不純物除去フィルター 52 部分でトラップされることになる。

【0038】トラップ温度を上昇させると（図 5 中の C

点)、ガス精製装置50から出てくるヘリウムガス中の窒素濃度が急上昇している。これは、固化蓄積された窒素が急激にガスとなり、不純物除去フィルター52を通してガス精製装置50の外に出てくることを意味する。すなわち、固化、析出さらにフィルタートラップによる本発明のガス精製装置50において、トラップ温度を制御することにより、簡単に不純物除去フィルター52の再生が可能となる。

【0039】 つぎに図6は、本発明の第2の実施の形態によるガス精製装置60の概略説明図であって、ガス精製装置60は、ガス精製装置50(図1)と同様の不純物除去フィルター52を有する。ただし、この不純物除去フィルター52をGM冷凍機33の第2段冷却ステージ42に直接的に熱接触はさせず、第2段冷却ステージ42と第2の熱交換器37との間に配置し、導入側ガス配管57を介して間接的に冷却するとともに、第2の熱交換器37から不純物除去フィルター52に至る導入側ガス配管57をラセン状に巻いて第2段冷却ステージ42に熱接触させることによりガス配管熱接触部61を形成してある。

【0040】 こうした構成のガス精製装置60において、ガス配管熱接触部61において導入側ガス配管57内の不純物が第2段冷却ステージ42により冷却されて固化、析出し、不純物除去フィルター52においてトラップされることになる。なお不純物除去フィルター52は、その内部を通過するヘリウムガス自体により、あるいは導入側ガス配管57を介した熱伝導作用で冷却されており、トラップした不純物を凝固ないし凝着状態で保持しておくことができる。このガス精製装置60では、不純物除去フィルター52に至る前(上流側)において第2段冷却ステージ42の冷却作用により、ガス中の不純物を固化、析出させるので、不純物の固化および析出作用を確実にを行った上で不純物除去フィルター52によるろ過作用を行うことができる。

【0041】

【発明の効果】 以上のように本発明によれば、不純物除去フィルターを低温にしてここに固化した不純物をトラップするようにしたので、不純物を効率よく除去して大量に処理することができるとともに、不純物除去フィルターの再生処理自体もこれを温度制御すればよいので、非常に簡単である。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の第1の実施の形態によるガス精製装置50の概略説明図である。

【図2】 同、不純物除去フィルター52の断面図である。

【図3】 同、図2のIII-III線断面図である。

【図4】 同、温度に対する不純物(窒素)の飽和蒸気圧の関係を示すグラフである。

【図5】 同、経過時間に対する窒素濃度の関係を示すグ

ラフである。

【図6】 本発明の第2の実施の形態によるガス精製装置60の概略説明図である。

【図7】 従来のヘリウムガス精製装置1の概略説明図である。

【図8】 大量のヘリウムガスを精製することを目的としている、従来の他のヘリウムガス精製装置20の概略説明図である。

【図9】 従来のさらに他のヘリウムガス精製装置30(特許第1946248号)の概略説明図である。

【符号の説明】

1 ヘリウムガス精製装置(図7)

2 原料ガス供給部

3 フィルター

4 流量計

5 精製筒

6 再生用キャリアーガス供給部

7 再生排ガス排出部

8 精製ガス排出部

9 吸着筒

10 吸着筒用ヒーター

11 吸収筒

12 吸収筒用ヒーター

20 ヘリウムガス精製装置(図8)

21 断熱容器

22 熱交換器

23 気液分離筒

24 吸着筒

25 液体窒素

26 原料ガス用バルブ

27 液体排出口用バルブ

28 精製ガス排出口用圧力調整バルブ

30 ヘリウムガス精製装置(図9)

31 真空断熱容器

32 第1の熱交換器

33 GM冷凍機(冷凍機)

34 気液分離器

35 第1の吸着筒

36 第2の吸着筒

37 第2の熱交換器

38 原料ガス用バルブ

39 液体排出口用バルブ

40 精製ガス排出口用圧力調整バルブ

41 GM冷凍機33の第1段冷却ステージ

42 GM冷凍機33の第2段冷却ステージ

50 ガス精製装置(第1の実施の形態、図1)

51 圧縮機

52 不純物除去フィルター

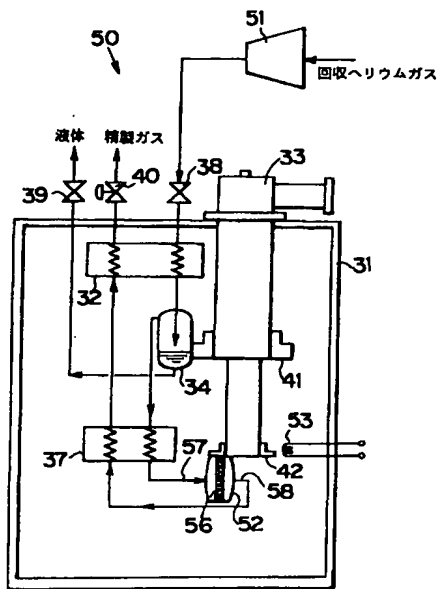
53 電気ヒーター

54 フィルターハウジング

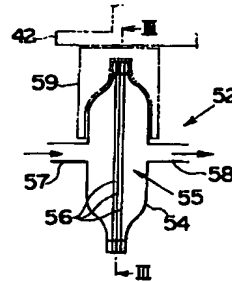
- 55 除去空間
- 56 フィルター材
- 57 導入側ガス配管
- 58 導出側ガス配管

- 59 銅ブロック
- 60 ガス精製装置（第2の実施の形態、図6）
- 61 ガス配管熱接触部

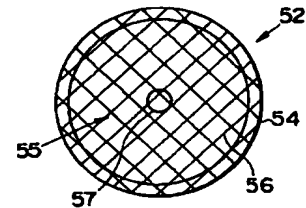
【図1】



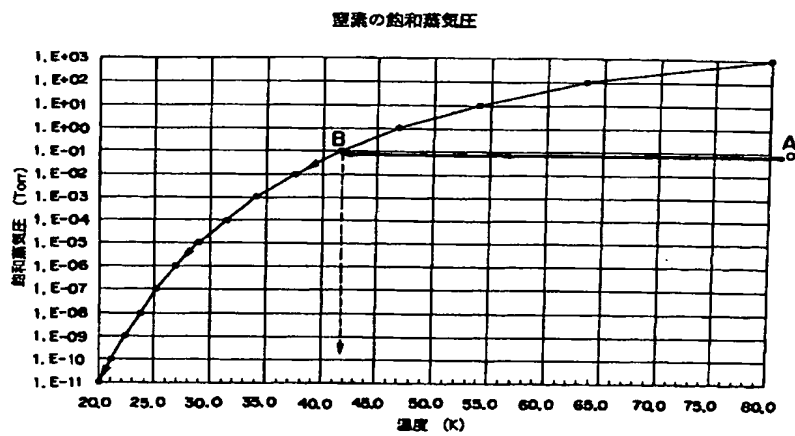
【図2】



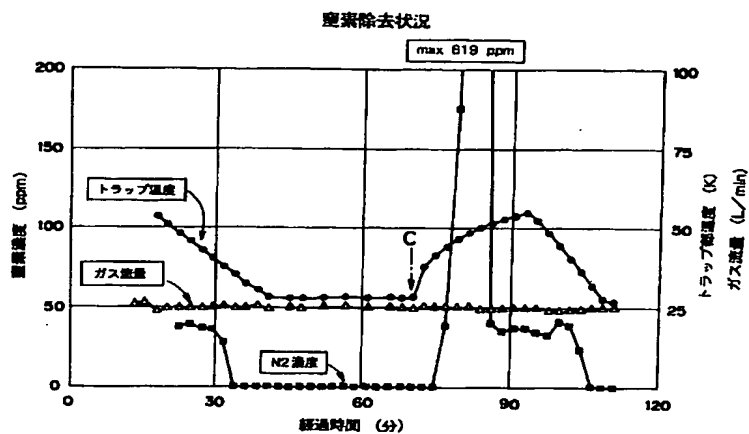
【図3】



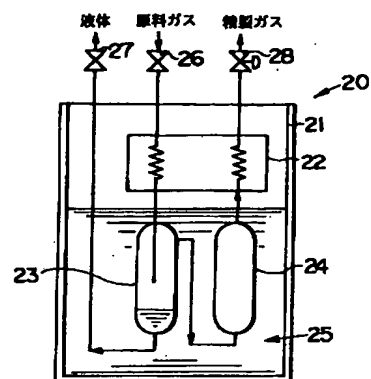
【図4】



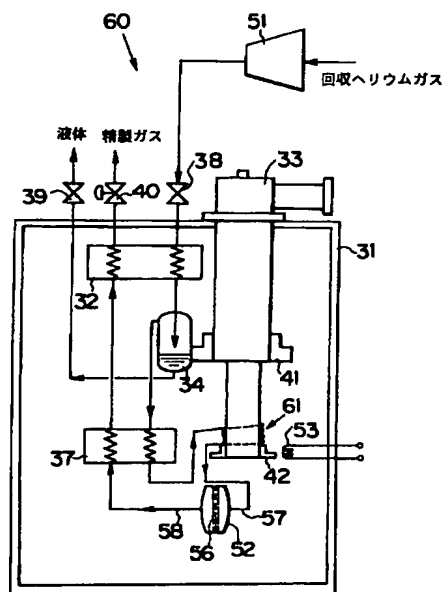
【図5】



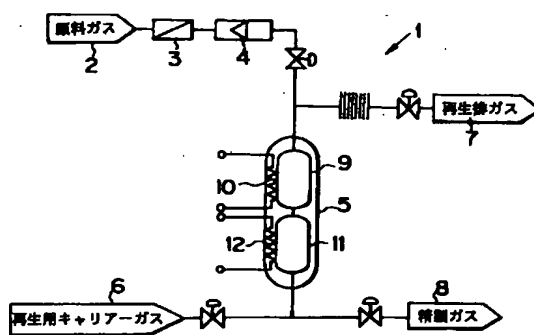
【図8】



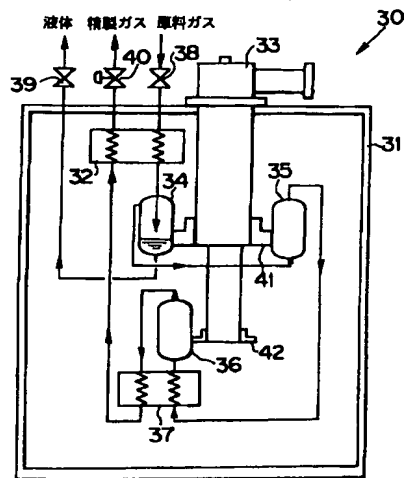
【図6】



【図7】



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 山田 俊治
神奈川県平塚市夕陽ヶ丘63番30号 住友重
機械工業株式会社平塚事業所内

(72)発明者 佐々木 俊三
東京都港区新橋2丁目13番8号 住商ファ
インガス株式会社内
Fターム(参考) 4D047 AA02 AA03 AB02 AB05 AB07
BA03 BB09 BB10 CA09 DA01
DA10 DA17